

19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

12 Offenlegungsschrift  
10 DE 197 27 841 A 1

21 Aktenzeichen: 197 27 841.8  
22 Anmeldetag: 24. 6. 97  
43 Offenlegungstag: 7. 1. 99

51 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
C 01 B 3/02  
C 01 B 3/26  
C 01 B 3/38  
// H01M 8/06

DE 197 27 841 A 1

71 Anmelder:  
Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der  
angewandten Forschung eV, 80636 München, DE  
74 Vertreter:  
PFENNING MEINIG & PARTNER, 10707 Berlin

72 Erfinder:  
Maier-Röltgen, Uli, Dipl.-Ing., 79379 Müllheim, DE;  
Schuler, Alexander, Dr.-Ing., 79098 Freiburg, DE;  
Finkbeiner, Hartmut, Dipl.-Ing., 72270 Baiersbronn,  
DE

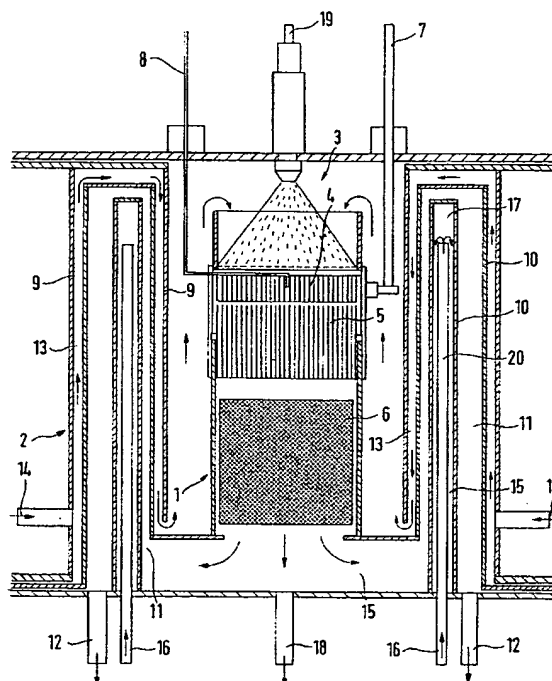
56 Entgegenhaltungen:  
DE 39 12 003 A  
AT 1 92 380  
US 47 89 540  
EP 03 03 438 A2  
JP 62-56304 A. In Patents Abstracts of Japan  
Vol.11 (1987) No.251 (C-440);  
JP 2-129001 A. In Patents Abstracts of Japan  
Vol.14 (1990), No.350 (C-744);  
JP 59-73403 A. In Patents Abstracts of Japan  
Vol.8 (1984) No.178 (C-238);  
JP 63-129002 A. In Patents Abstracts of Japan  
Vol.12 (1988) No.382 (C-535);  
JP 1-157402 A. In Patents Abstracts of Japan  
Vol.13 (1989) No.419 (C-637);

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

54 Verfahren und Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen

57 Es wird ein Verfahren und eine Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen vorgeschlagen, bei denen der Brennstoff über eine Zuführungseinrichtung einem Reformierreaktor zugeführt wird. Das entstehende Reformat wird in einem Wärmetauscher im Gegenstrom und in wärmetauschender Weise zu von außen nach innen geführten Ausgangsstoffen der Reformierung geleitet. Der über die Zuführungseinrichtung zugeführte Brennstoff wird mit dem Ausgangsstoff direkt auf die einen Katalysator aufweisenden Reaktionszone aufgebracht, in der die Verbrennung und Reformierung bzw. Katalyse gleichzeitig und im gleichen Bereich durchgeführt wird.



DE 197 27 841 A 1

BEST AVAILABLE COPY

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung und ein Verfahren zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen, die beispielsweise in Form von Erdgas, Benzin, Methanol, Diesl, Flüssiggas usw. vorhanden sind.

Die industrielle Wasserstofferzeugung aus fossilen Energieträgern wie Erdgas, Flüssiggas oder Naphta wird hauptsächlich nach dem Steam-Reforming-Verfahren in mit Katalysator befüllten Röhrenöfen mit indirekter Beheizung durchgeführt. Die wasserstoffreichen Synthesegase dienen beispielsweise der Herstellung von Ammoniak, Alkoholen oder zur Methanolsynthese, aber auch zur Gewinnung von Reinstwasserstoff. Bedingt durch die Größe der Anlagen sind aufwendige Verfahrensschritte in getrennten Reaktorkonstruktionen möglich.

Neben den großindustriellen Wasserstofferzeugungsanlagen sind im Zuge der Brennstoffzellenforschung spezielle Reformer entwickelt worden, die auf dem sogenannten heat-exchange-Prinzip basieren. Die Produktionsleistung an Wasserstoff liegt bei diesen Reformern in der Größenordnung einiger 100 kW bezogen auf den unteren Heizwert des Wasserstoffvolumenstroms. Als Wasserstoffnutzer werden die Hochtemperaturbrennstoffzellen SOFC oder MCFC und die bereits kommerziell vertriebene Phosphorsäure Brennstoffzelle zur dezentralen Stromerzeugung eingesetzt.

Für kleinere Systeme mit Polymermembranbrennstoffzellen wird im Hinblick auf die mobile Anwendung meist Methanol als Energieträger gewählt, wobei die autotherme Reformierung von Methanol schon bei Temperaturen von 200°C bis 300°C abläuft und gegenüber der Reformierung von z. B. Methan eine geringere Reaktionsenthalpie erfordert.

Die obengenannten heat-exchange-Reformer zeichnen sich durch Gegenstrom- und Gleichstromführung der Stoffströme Rauchgas und Prozeßgas aus. Die Reformierreaktion findet in mit Feststoffkatalysator, zum Beispiel Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gefüllten Rohr- oder Ringspaltreaktoren statt. Der Flammbrenner liegt meist zentrisch in der Reformiereinheit oder ist an den Reformer angeflanscht. Die Rauchgase werden dann in Spalten an den Reaktorwänden vorbeigeführt, wo der für die Reaktion benötigte Wärmestrom konvektiv übertragen wird. Voraussetzung für gute Umsätze sind ausreichend große Übertragflächen. Das Prozeßgas nach der Reformierung wird ebenfalls im Gegen- oder Gleichstrom zum eintretenden Eduktgas geführt, um den hohen Enthalpiestrom des Synthesegases wenigstens teilweise zur Aufwärmung der Edukte zu nutzen und damit Feuerungsleistung zu sparen. Die Nachteile der bestehenden Reformer sind darin zu sehen, daß sie nicht durch einfaches Scale down auf kleine Systeme angepaßt werden können und insbesondere das thermische Management gestaltet sich in kleinen Reaktoren schwierig.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Vorrichtung und ein Verfahren zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen insbesondere im kleinen Leistungsbereich zu schaffen, mit denen Wärmeverluste minimiert werden können, wobei ein gutes dynamisches Verhalten geliefert werden soll und insbesondere für die mobile Anwendung die Vorrichtung klein und kompakt ausgebildet sein soll.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch die Merkmale des Hauptanspruchs und des nebengeordneten Anspruchs gelöst. Dadurch, daß der Brennstoff, gemischt mit Ausgangsstoffen der Reformierung direkt auf den Katalysator des Reformierreaktors aufgebracht wird und die Verbrennung und Reformierung im wesentlichen in dem gleichen Reaktionsbereich stattfindet, wobei mindestens ein

Teil der Ausgangsstoffe in einem Wärmetauscher im Wärmeaustausch mit dem aus dem Reformierreaktor austretenden Reformat vorgeheizt werden, kann eine wärmeproduzierende und wärmeverbrauchende Reaktion an einer Stelle durchgeführt werden, wodurch ein sehr gutes dynamisches Verhalten vorhanden ist, da keine Hemmung durch Wärmeübertragung gegeben ist. Zum Starten der Vorrichtung wird eine kurze Startzeit durch geringe aufzuheizende Masse ermöglicht, die Temperatur des Katalysators ist durch Zugabe der beispielsweise als Luft ausgebildeten Ausgangsstoffe frei einstellbar und die Wasserstoffausbeute ist durch Zugabe von Wasser oder Wasserdampf steuerbar. Insgesamt wird eine hohe Leistungsdichte pro Systemvolumen erreicht. Darüber hinaus wird eine einfache und kompakte integrative Bauweise zur Verfügung gestellt, da ein separater Verdampfer oder eine Verdampferstufe für flüssige Brennstoffe wegfällt, und keine externe Beheizung, das heißt ein Brenner notwendig ist.

Weiterhin ist eine Umsetzung von verschiedenen Kohlenwasserstoffen in einem Gerät möglich und es kann der Betrieb sowohl unter Druck als auch drucklos durchgeführt werden. Die Kohlenwasserstoffmenge kann in weiten Bereichen (1 : 5 und mehr) moduliert werden und es sind sehr kleine Leistungen möglich.

Durch die in den Unteransprüchen angegebenen Maßnahmen sind vorteilhafte Weiterbildungen und Verbesserungen möglich.

Es wird eine autotherme Reformierung in einem Wabenkatalysator und/oder in einer Katalysatorschüttung durchgeführt, wobei die Reaktion bei niedrigen Temperaturen ermöglicht wird und Materialprobleme vermieden werden. Eine vorherige Verdampfung des flüssigen Kohlenwasserstoffs ist nicht notwendig. Durch Vorsehen des Wärmetauschers um die Reaktionszone können die als Ausgangsstoffe verwendete Luft und/oder der Sauerstoff und/oder das Wasser und/oder der Wasserdampf vorgeheizt werden und es werden Wärmeverluste nach außen vermieden. Im Betrieb wird durch Vermischung des Flüssigkeitsnebels mit der vorgewärmten Luft/Sauerstoff/Wasser/Wasserdampf-Mischung und durch Wärmerückstrahlung des Katalysators ein Teil der Flüssigkeit verdampft. Es ist eine Zugabe von Luft und/oder Sauerstoff und/oder Wasserstoff und/oder über die Zufuhrdüse, die als Zweistoffdüse ausgebildet sein kann, und den Wärmetauscher möglich. Die Regelung der Prozeßbedingungen kann durch Einstellung der Verhältnisse der Zugabe leicht vorgenommen werden. Weiterhin kann das Wasser bzw. der Wasserdampf auch gemeinsam mit dem Kohlenwasserstoff über die Düse zugegeben werden, wodurch Rußbildung und Ablagerungen unterdrückt werden.

Durch Eindüsung in die Reaktionszone wird der Kohlenwasserstoff extrem schnell auf Prozeßtemperatur gebracht und die Reaktion kann sofort und sehr schnell in die gewollte Richtung verlaufen. Dadurch werden unerwünschte Nebenreaktionen wie z. B. Cracken, die durch langsames Aufheizen des Kohlenwasserstoffs stattfinden können und zu Ablagerungen führen, vermieden.

Ausführungsbeispiele der Erfindung sind in der Zeichnung dargestellt und werden in der nachfolgenden Beschreibung näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 einen Schnitt durch ein erstes Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen Vorrichtung,

Fig. 2 einen Schnitt durch ein zweites Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen Vorrichtung,

Fig. 3 einen Schnitt durch ein drittes Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen Vorrichtung, und

Fig. 4 einen Schnitt durch ein viertes Ausführungsbeispiel der Erfindung.

In Fig. 1 ist eine Vorrichtung zur autothermen Reformie-

rung dargestellt, die flüssige und gasförmige Kohlenwasser-  
 stoffe katalytisch in Synthesegase umsetzt. Die Vorrichtung  
 besteht aus einem Reformierreaktor 1, einem Wärmetau-  
 schers 2 und einem Eindüsen-Mischungsraum 3, die in einer  
 Konstruktion bzw. in einer Einheit realisiert sind. Der  
 Reformierreaktor 1 besteht aus zwei Bereichen, einem obere-  
 5 ren Bereich und einem unteren Bereich, wobei der obere Be-  
 reich Wabenkörper 4, 5 und der untere Bereich eine Schüt-  
 tung 6 aufweist. Es sind ein erster Wabenkörper 4 und ein  
 davon getrennter zweiter Wabenkörper 5 vorgesehen, wobei  
 10 die Wabenkörper aus Metall oder Keramik bestehen können,  
 die als Träger für einen Katalysator dienen. Die Wabenkör-  
 per sind daher mit einem Katalysator beschichtet, der aus  
 Platin besteht oder Nickel aufweist, wobei jedoch jegliche  
 Katalysatorbeschichtung verwendet werden kann, sofern  
 15 diese für die Reformierung geeignet ist. Gleiches gilt für den  
 Katalysatorträger. Die Schüttung ist im vorliegenden Aus-  
 führungsbeispiel als keramische Schüttung ausgebildet, die  
 ebenfalls mit Katalysator entsprechend den obigen Angaben  
 beschichtet ist.

Anstelle der Schüttung kann auch ein Wabenkörper bzw.  
 ein entsprechender mit Katalysatormaterial versehener per-  
 meabler Festkörper verwendet werden, bei dem der Druck-  
 verlust geringer ist.

Zum Starten ist der erste Katalysator 4 elektrisch beheizt,  
 was durch die elektrische Leitung 7 angedeutet ist. Anstelle  
 der elektrischen Heizung kann im Mischraum 3 eine Zünd-  
 vorrichtung vorgesehen sein.

Weiterhin ist im Bereich des ersten Wabenkörpers 4 ein  
 Temperatursensor mit Anschlußleitung 8 vorgesehen, die  
 zur Überwachung der Temperatur dienen.

Der Wärmetauscher 2 besteht aus mehreren zylindrischen  
 Wänden 9 bzw. zylindrischen ringförmigen Hohlkörpern 10,  
 die so angeordnet und ineinander verschachtelt sind, daß sie  
 mindestens zwei getrennte Strömungswege mit mehrfachen  
 Umleitungen bilden. Ein Strömungsweg 11 für das Reform-  
 20 at schließt sich an das untere Ende des Reformierreaktors  
 1, an dem das Reformat austritt, an, wird nach oben und an-  
 schließend nach unten umgelenkt und mündet in einen Aus-  
 laß 12. Ein weiterer Strömungsweg 13 nach Fig. 1 steht mit  
 einem Eintrittsanschluß 14 für Luft, Sauerstoff, Wasser und/  
 oder Wasserdampf in Verbindung, wird im oberen Bereich  
 der Vorrichtung nach unten umgelenkt und mündet in den  
 freien Raum zwischen Wärmetauscher 2 und Reformierre-  
 25 aktor 1, in dessen oberem Bereich sich der Mischraum 3 be-  
 findet. Weiterhin wird ein abgeschlossener Strömungsweg  
 15 gebildet, der mit einem Einlaß 16 gleichfalls für Luft,  
 Sauerstoff, Wasser oder Wasserdampf verbunden ist, und  
 daran anschließend von einem hohlen Ringrohr 17 begrenzt  
 ist, am Austritt des Ringrohrs 17 nach unten umgelenkt wird  
 und am Auslaß 18 aus dem Wärmetauscher herausführt. Im  
 Ausführungsbeispiel ist der bzw. sind die Einlässe 16 mit je-  
 30 weils einem in das Ringrohr 17 hineinragende Hohlrohr 20  
 verbunden, von denen über den Umfang mehrere vorgese-  
 hen sein können. Der Strömungsweg 15 dient zur Vorerwär-  
 mung des Ausgangsstoffes und sein Auslaß 18 kann mit  
 dem Einlaß 14 oder auch mit einer Zufuhreinrichtung im  
 oberen Bereich der Vorrichtung verbunden sein.

Im oberen Bereich der Vorrichtung ist eine als Düse 19  
 ausgebildete Zufuhreinrichtung für Brennstoff vorgesehen,  
 35 die in den Mischraum 3 mündet, wobei die Düse 19 als Ein-  
 oder Zweistoffdüse ausgebildet ist. Zusammen mit dem  
 Brennstoff kann sowohl die Luft, Sauerstoff, Wasserdampf  
 als auch das Wasser miteingebracht werden, wobei der ent-  
 sprechende Ausgangsstoff kalt oder über den Wärmetau-  
 40 schers vorgewärmt ist.

Wesentlich ist, daß der Wärmetauscher 2, wie das Aus-  
 führungsbeispiel zeigt, um den Reaktionsraum herum ange-

ordnet ist, wobei er aus konzentrischen Rohren besteht und  
 in den dadurch entstehenden Ringspalten die Ausgangs-  
 stoffe der Wärme, d. h. die zugeführte Luft, der Sauerstoff,  
 der Wasserdampf und eventuell das zugeführte Wasser im  
 5 Gegenstrom zum Reformat im Wärmetausch mit diesem  
 von außen nach innen geführt werden. Dadurch werden die  
 Wärmeverluste nach außen minimiert und aufwendige, der  
 kompakten Bauweise abträgliche Isolationsmaßnahmen  
 vermieden. Der Aufbau des Reformierreaktors 1 und des  
 10 Wärmetauschers 2 muß, wie in der Ausgestaltung gezeigt,  
 Wärmedehnungen ohne unzulässige Verspannungen zulassen,  
 um die Dichtheit und Materialbeständigkeit des Reform-  
 ers zu gewährleisten. Dies wird dadurch erreicht, daß im  
 heißen Mittelbereich die Ringrohre hängend angeordnet  
 15 sind und die Teile des Wärmetauschers nur außen im kalten  
 Bereich zum Beispiel verschraubt sind.

Zu Beginn des Betriebes der Vorrichtung wird der erste  
 Wabenkörper 4 vorgeheizt und der Brennstoff in flüssiger  
 oder gasförmiger Form über die Düse 19 zusammen mit  
 20 dem Ausgangsstoff, der vorgewärmt sein kann, d. h. Luft  
 und/oder Sauerstoff gegebenenfalls Wasserdampf in den  
 Mischraum 3 eingeführt und auf den Wabenkörper 4 aufge-  
 düst. Dadurch wird die Verbrennung des Brennstoffs gestar-  
 tet. Nach Erreichen der nötigen Reformierungstemperatur  
 wird durch Ändern der Luftzufuhr bzw. Sauerstoffzufuhr  
 und Zugabe von Wasser oder Wasserdampf in den Reform-  
 25 mierungsbetrieb übergegangen. Die Verdüsung mit Wasser-  
 dampf bewirkt eine besseren Brennstoffumsatz und unter-  
 drückt stärker eine eventuelle Rußbildung. In dem Reform-  
 mierungsreaktor wird die katalytisch unterstützte Verbrennung  
 und die Reformierung selbst gleichzeitig katalytisch durch-  
 geführt.

Über den Sensor 8 kann die Temperatur überwacht wer-  
 den, wobei abhängig von dem Meßwert die Temperatur ange-  
 35 paßt werden kann. Während des Betriebes können die  
 Temperatur, der Stoffdurchsatz und die Temperaturverteil-  
 ung im Katalysator gezielt beeinflußt werden. Die freien  
 Parameter sind der Luftdurchsatz (Sauerstoffdurchsatz), der  
 Brennstoffdurchsatz und der Wasserdurchsatz, sowie die  
 Zugabe der Luft und des Wassers direkt ohne Vorwärmung  
 in die Reaktionszone oder indirekt ganz oder teilweise über  
 den Wärmetauscher in die Reaktionszone. Dadurch ist eine  
 hohe Modulierbarkeit mit annähernd gleichbleibender Pro-  
 40 duktgaszusammensetzung möglich. Besonders in Verbind-  
 ung mit Brennstoffzellen, die ein exzellentes Teillastver-  
 halten besitzen und dort auch betrieben werden, stellt die  
 Flexibilität des Reformers ein wichtiges Kriterium dar.

Das Reformat tritt, wie durch die Pfeile in Fig. 1 angede-  
 45 utet, unten aus dem Schüttbett 6 aus, wird in dem Strömungs-  
 weg 11 nach oben gelenkt, im oberen Bereich wieder umge-  
 lenkt und tritt am Auslaß 12 aus der Vorrichtung aus.  
 Gleichzeitig wird im Gegenstrom über den Einlaß 14 und  
 den Strömungsweg 13 der Ausgangsstoff von außen nach  
 50 innen in den Reaktorraum eingeleitet, wobei das Reformat  
 seine Temperatur an die Ausgangsstoffe abgibt. Zusätzlich  
 wird Luft, Sauerstoff, Wasserdampf oder Wasser über den  
 Einlaß 16 in das Hohlrohr 20 eingeleitet, im oberen Bereich  
 umgelenkt und am Auslaß 18 wieder herausgezogen, wobei  
 55 die Stoffe gleichfalls durch die Wärme des Reformats aufge-  
 heizt werden. Je nach Bedarf kann der Wärmetauscher 2  
 vollständig, d. h. vom Einlaß 16 über den Strömungsweg 15  
 zum Auslaß 18, wobei die Strömung auch umgekehrt erfol-  
 gen kann, d. h. der Einlaß ist bei 18 und der Auslaß bei 16  
 60 und dann vom Auslaß 16 bzw. 18 zum Einlaß 14 und weiter  
 über den Strömungsweg 13, durchströmt werden. Er kann  
 jedoch auch nur teilweise über den Einlaß 14 und den Strö-  
 mungsweg 13 durchströmt werden oder bei 14 kann eine  
 Mischung aus dem vorgewärmten Ausgangsstoff und fri-

schem Ausgangsstoff zugeführt werden.

In Fig. 2 ist ein weiteres Ausführungsbeispiel dargestellt, wobei hier ein oder mehrere Rohre 21 vorgesehen sind, die im oberen Bereich der Vorrichtung im heißen Teil des Wärmetauschers 2 im Strömungsweg 13 münden. Den Rohren 21 wird beim Einlaß 22 Wasser bzw. Wasserdampf zugegeben, das sich an der heißeren Stelle des Wärmetauschers 2 mit dem über den Einlaß 14 zugeführten Ausgangsstoff vermischt. Dies ermöglicht insbesondere beim Hochfahren des Systems eine frühere Zugabe von Wasser oder Wasserdampf ohne die Gefahr des Auskondensierens und Ansammelns von Wasser im System. Über eine Zuführung 23, die als Düse ausgebildet sein kann, besteht die Möglichkeit, das Reformat sofort nach der Reformierung herunter zu quench, d. h. durch Wassereindüsung schneller herunterzukühlen, was eine eventuelle Kohlenstoffabscheidung unterdrückt.

In Fig. 3 weist der Wärmetauscher 2 eine Verdampferwendel 24 auf, wobei über einen Zulaß 25 in einem Rohr 26 Wasser oder Wasserdampf in den oberen Bereich der Wendel geleitet wird, in der auf dem Weg nach unten eine vollständige Verdampfung stattfindet und bei dem Auslaß 28 kann der erhitzte Ausgangsstoff abgezogen werden, der wiederum vollständig oder teilweise dem Einlaß 14 oder vollständig oder teilweise der Düse 19 zugeführt werden kann. Dadurch wird ein höherer Wirkungsgrad erreicht und/oder durch mehr Wasser bzw. Wasserdampf wird eine eventuelle Rußbildung stärker unterdrückt. In der Verdampferwendel 24 kann auch Brennstoff vorbehandelt und entsprechend dem Prozeß zugeführt werden.

Das Ausführungsbeispiel nach Fig. 4 ist ähnlich zu dem nach Fig. 3, wobei dem Einlaß 25 der Verdampferwendel Brennstoff, Wasser bzw. Wasserdampf, Luft und/oder Sauerstoff zugegeben werden kann. Der Auslaß der Verdampferwendel 24 ist mit einer Rohrleitung 27 verbunden, die direkt in dem Raum zwischen zweitem Wabenkörper 5 und Schüttung 6 mündet. Der oder die über den Zulaß 25 eingeführten Stoffe werden nach der Vorwärmung über die Verdampferwendel 24 zwischen den beiden Katalysatoren, bestehend aus beschichtetem Wabenkörper 5 und beschichteter Schüttung 6 in den Reformierungsprozeß eingebracht. Dadurch kann der Reformierungsprozeß, d. h. das thermodynamische Gleichgewicht, sowie die Temperatur zusätzlich stark beeinflußt bzw. optimiert werden. Es kann auch eine der Rohrleitung 27 entsprechende Rohrleitung direkt, ohne den Weg über die Verdampferwendel zu nehmen, in die Reaktionszone eingeführt werden.

Die Ein- und Auslässe können je nach Anwendungsfall gewechselt werden, so daß die Strömungswege ihre Richtung umkehren.

#### Patentansprüche

1. Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen mit einer Zuführungseinrichtung für den Brennstoff und einem Reformierreaktor (1), dem ein Wärmetauscher (2) zugeordnet ist, wobei der einen Katalysator aufweisende Reformierreaktor (1) vom Wärmetauscher (2) umgeben ist und wobei der über die Zuführungseinrichtung (19) eingeführte Brennstoff gemischt mit Ausgangsstoffen der Reformierung direkt auf den Katalysator aufgebracht wird und Verbrennung und Reformierung im wesentlichen in der gleichen Reaktionszone stattfindet.
2. Vorrichtung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß der Reformierreaktor (1) unterhalb der Zuführungseinrichtung (19) angeordnet ist, und daß zwischen Zuführungseinrichtung (19) und Reformier-

reaktor (1) ein Mischraum (3) vorgesehen ist, in dem der Brennstoff mit den Ausgangsstoffen gemischt wird.

3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Reformierreaktor (1) mindestens zweistufig ist und mindestens einen mit Katalysatormaterial beschichteten permeablen Festkörper (4, 5) und einen sich daran anschließenden Katalysatormaterial aufweisenden Schüttbett (6) oder einen weiteren mit Katalysatormaterial versehenen permeablen Festkörper aufweist.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der permeable Festkörper ein metallischer und/oder keramischer Wabenkörper ist.

5. Vorrichtung nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, daß der permeable Festkörper zwei übereinanderliegende getrennte Teile (4, 5) aufweist, wobei der obere Teil elektrisch vorheizbar ist.

6. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) mehrere konzentrisch angeordnete Ringspalte aufweist, in denen mindestens ein Teil der Ausgangsstoffe der Reformierung im Gegenstrom mit dem aus dem Reformierreaktor (1) austretenden Reformat von außen nach innen geführt werden.

7. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsstoffe Luft und/oder Sauerstoff und/oder Wasserdampf und/oder Wasser sind.

8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Zuführungseinrichtung eine Düse (19) aufweist, die den Brennstoff auf das Katalysatormaterial des permeablen Festkörpers (4, 5) aufdüst.

9. Vorrichtung nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Düse als Zweistoffdüse ausgebildet ist, durch die zusätzlich zum Brennstoff Ausgangsstoff eingedüst wird.

10. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) eine Verdampferwendel (24) aufweist, die von den gesamten oder von einem Teil der Ausgangsstoffe und/oder von Brennstoff durchströmt ist.

11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) mit einer Leitung (27) verbunden ist, die einen Teil des Ausgangsstoffs in den Mittelbereich des Reformierreaktors (1) führt.

12. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Brennstoff gasförmig und/oder flüssig ist.

13. Verfahren zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen, bei dem der Brennstoff einer Reformierungszone zugeführt wird und das entstehende Reformat im Gegenstrom und in wärmetauschender Weise zu von außen nach innen zugeführten Ausgangsstoffen der Reformierung geleitet wird, wobei der zugeführte Brennstoff, gemischt mit dem Ausgangsstoff, direkt auf die einen Katalysator aufweisenden Reaktionszone aufgebracht wird, in der die Verbrennung und Reformierung gleichzeitig katalytisch durchgeführt wird.

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß zum Starten der Reaktion der Katalysator elektrisch vorgeheizt wird und/oder der Brennstoff für eine kurzzeitige reine Verbrennung durch einen Zündfunken gezündet wird.

15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Brennstoff und/oder der Ausgangsstoff in gasförmigem und/oder flüssigem Zustand

auf den Katalysator aufgedüst wird.

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens ein Teil der Ausgangsstoffe im Wärmeaustausch mit dem Reformat vorgeheizt und mit dem Brennstoff zugeführt werden. 5

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsstoffe Luft und/oder Sauerstoff und/oder Wasser und/oder Wasserdampf sind. 10

18. Verfahren nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß Wasser und/oder Wasserdampf an einer heißeren Stelle des Wärmetauschers mit dem Reformat zugeführt wird.

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 18, 15 dadurch gekennzeichnet, daß vorgewärmte oder nicht vorgewärmte Ausgangsstoffe und/oder Brennstoff direkt in den mittleren Bereich der Reaktionszone eingebracht werden.

20

---

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

---

25

30

35

40

45

50

55

60

65

- Leerseite -

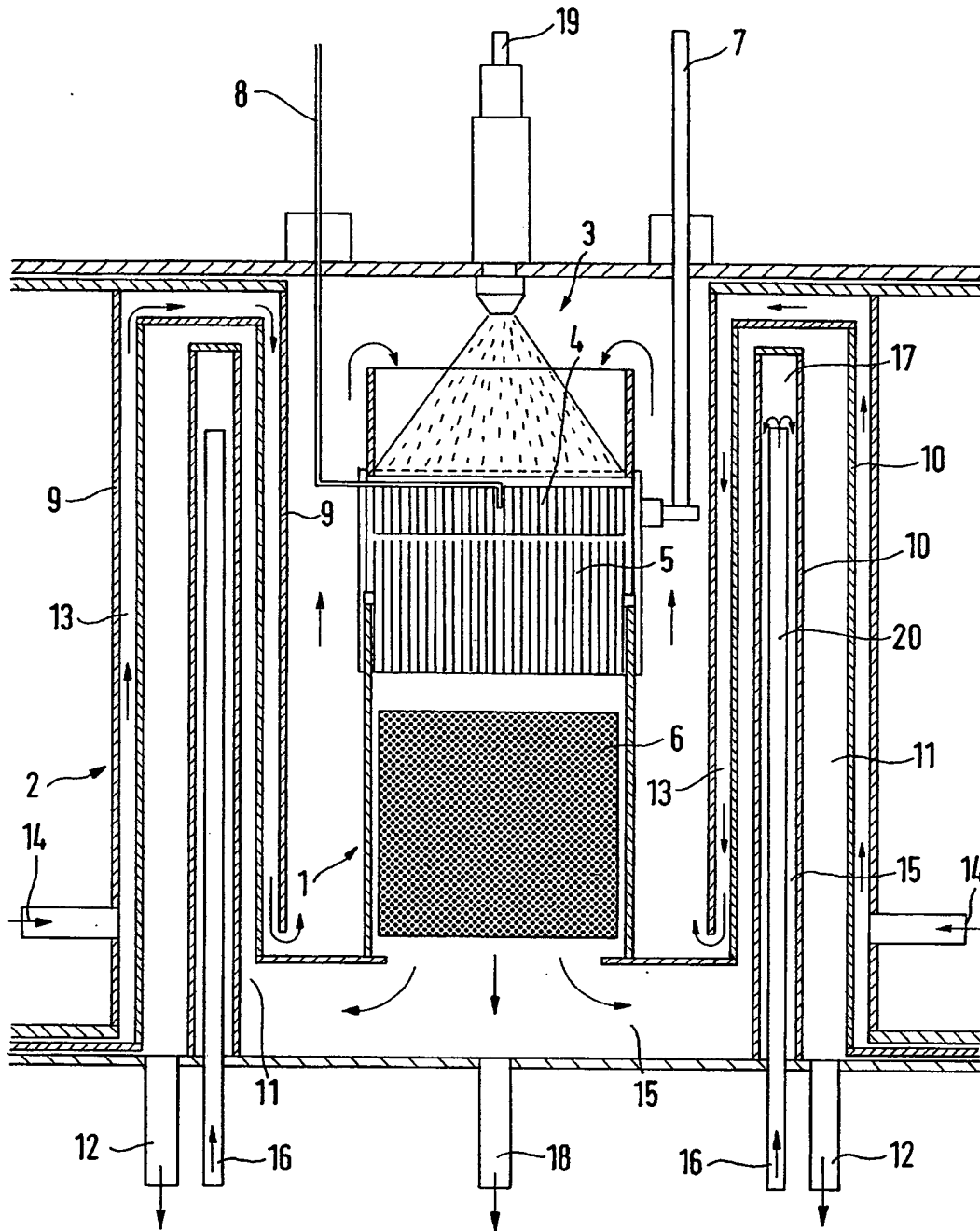


FIG. 1

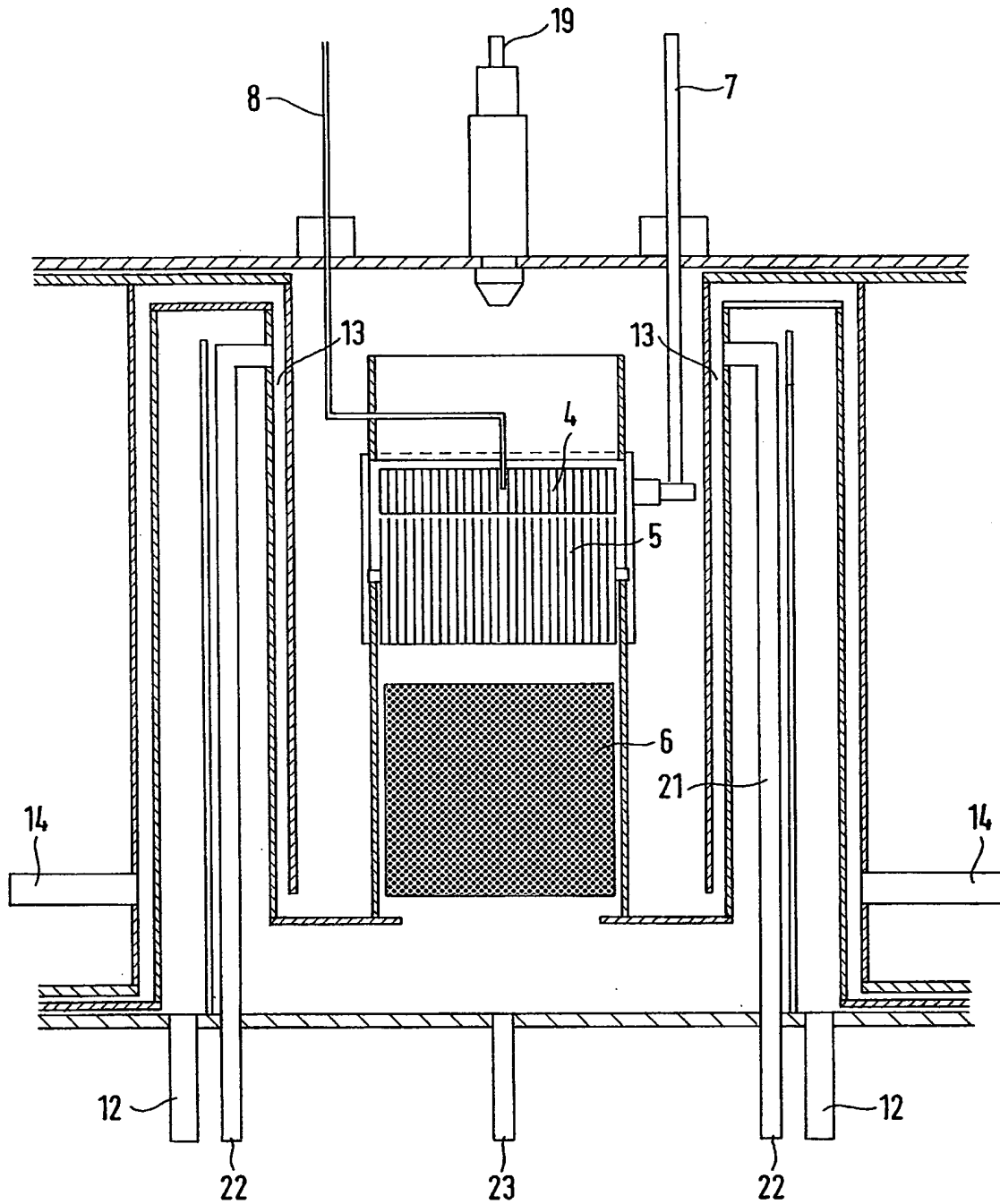


FIG.2



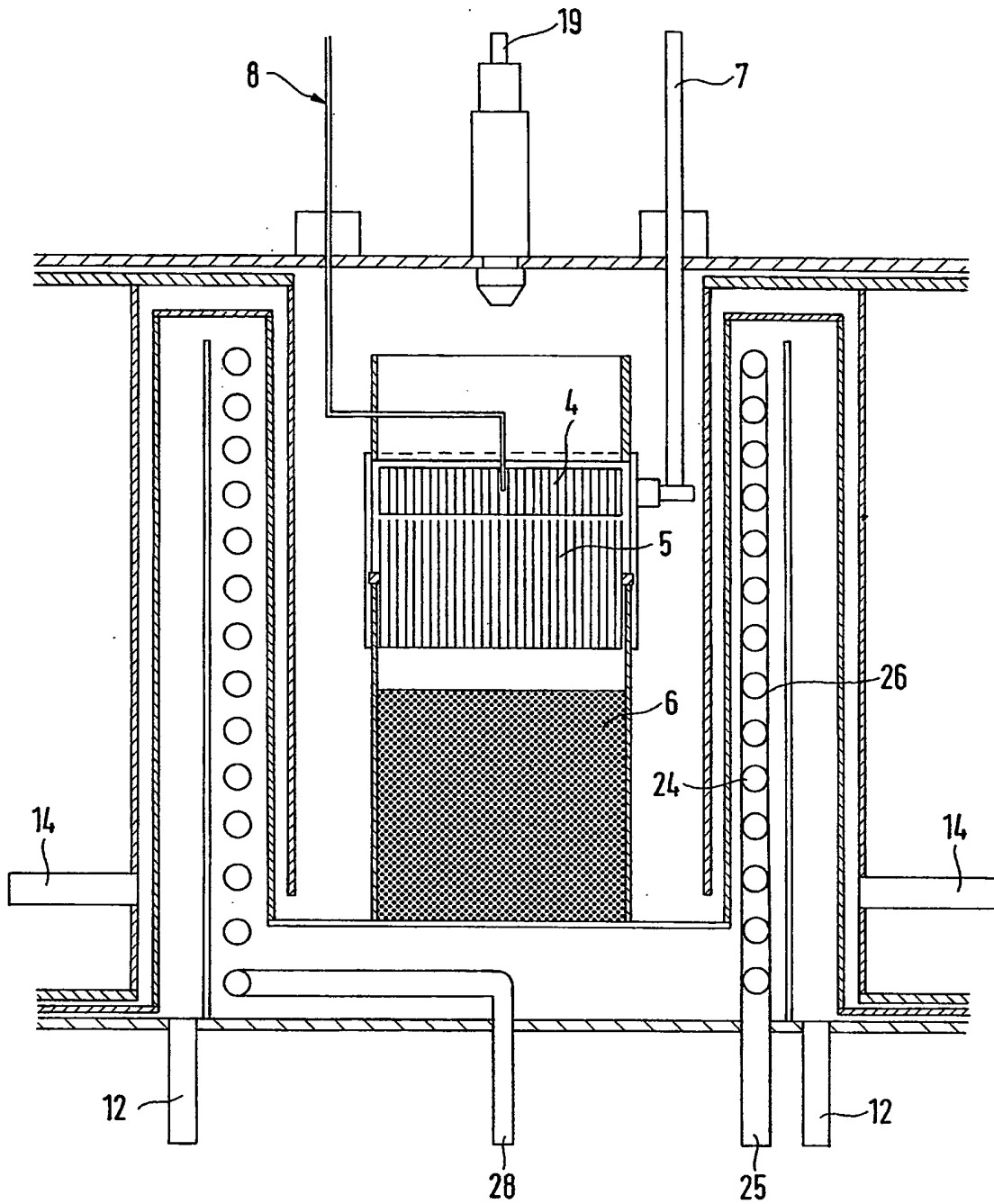


FIG. 3

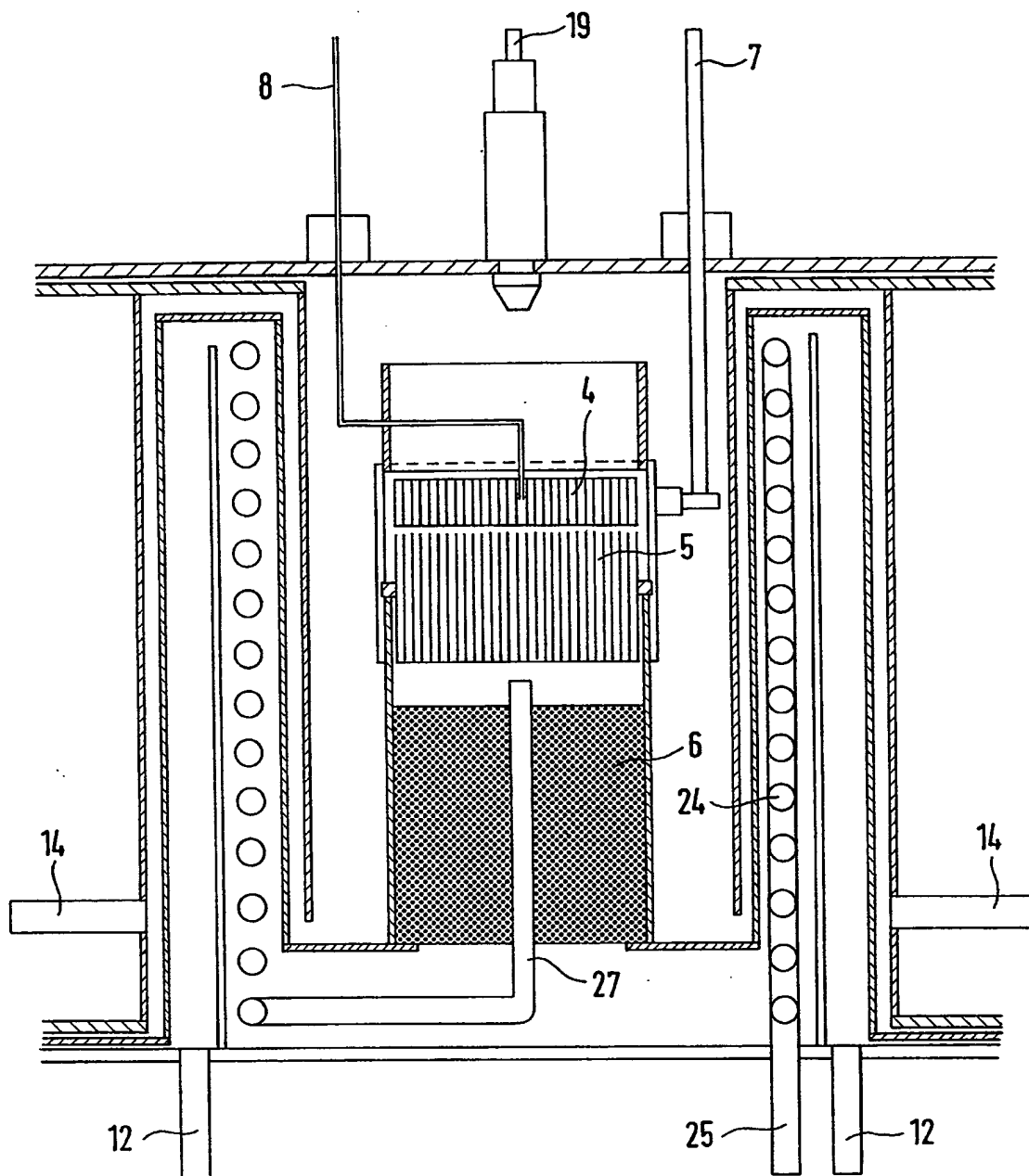


FIG. 4

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**